



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ **Patentschrift**
⑩ **DE 196 49 457 C 1**

⑤① Int. Cl.⁶:
H 01 M 8/12

②① Aktenzeichen: 196 49 457.5-45
②② Anmeldetag: 28. 11. 96
④③ Offenlegungstag: –
④⑤ Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 10. 6. 98

DE 196 49 457 C 1

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑦③ Patentinhaber:
Siemens AG, 80333 München, DE

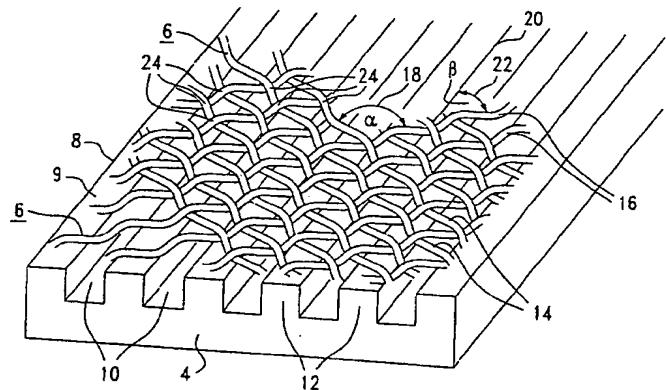
⑦② Erfinder:
Friedl, Edgar, 91361 Pinzberg, DE; Aßmann,
Helmut, Dr.-Ing., 91077 Dormitz, DE; Fleck, Robert,
Dipl.-Phys., 91325 Adelsdorf, DE

⑤⑥ Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht
gezogene Druckschriften:

DE	43 40 153 C1
DE	39 22 673 C2
DE	42 37 602 A1
US	50 64 734 A
US	50 34 288 A
EP	07 22 193 A1

⑤④ Hochtemperatur-Brennstoffzelle und Verfahren zum Herstellen einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle

⑤⑦ Bei der vorliegenden Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) mit wenigstens einer metallischen Verbundleiterplatte (4), die auf einer Oberfläche (8) parallel zueinander verlaufende Stege (12) aufweist, wird auf den Stegen (12) ein Geflecht (6) so angeordnet, daß wenigstens ein Flechtfa-
den (14, 16) des Geflechts (6) schräg zu den Kanten (20) der Stege (12) angeordnet ist. Durch diese Maßnahme wird die elektrische Stromdichte gegenüber den aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellen erhöht.



DE 196 49 457 C 1

Beschreibung

Die Erfindung bezieht sich auf eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle und auf ein Verfahren zum Herstellen einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle.

Die Komponenten einer planar aufgebauten Hochtemperatur-Brennstoffzelle bzw. eines Hochtemperatur-Brennstoffzellen-Stapels werden aus technischen Gründen mittels eines Glaslotes zusammengefügt. Die Verwendung eines Glaslotes ergibt sich aus der Forderung nach einer sogenannten "schwimmenden Lagerung". Dabei muß das Glaslot bei Abkühl- und Aufheizvorgängen, wie z. B. beim Abkühlen von der Löttemperatur beim Zusammenfügen auf die Betriebstemperatur oder beim Aufheizen beim Einschaltvorgang auf die Betriebstemperatur, eine ausreichend niedrige Viskosität aufweisen. Eine niedrige Viskosität bedeutet mit anderen Worten eine hohe Fließfähigkeit. Dadurch werden mechanische Spannungen in der Hochtemperatur-Brennstoffzelle vermindert, welche durch unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizienten der Hochtemperatur-Brennstoffzelle zusammensetzenden Komponenten bedingt sind. Das Glaslot befindet sich beim Betrieb der Hochtemperatur-Brennstoffzelle somit in einem aufgeweichten Zustand.

Bei dem aus einer Vielzahl von Hochtemperatur-Brennstoffzellen sich zusammensetzenden Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel, in der Fachliteratur wird ein Brennstoffzellenstapel auch "Stack" genannt, liegen unter einer oberen Verbundleiterplatte, welche den Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel abdeckt, der Reihenfolge nach wenigstens eine Schutzschicht, eine Kontaktschicht, eine Elektrolyt-Elektroden-Einheit, eine weitere Kontaktschicht, wenigstens eine weitere Schutzschicht, eine weitere Verbundleiterplatte usw. aufeinander.

Die Elektrolyt-Elektroden-Einheit umfaßt dabei zwei Elektroden und einen zwischen den beiden Elektroden angeordneten Festelektrolyten. Die Verbundleiterplatten innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapels sind als bipolare Platten ausgeführt. Diese sind im Gegensatz zu der jeweils am Ende des Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapels angeordneten Verbundleiterplatte auf beiden Seiten mit gasführenden Kanälen für die Versorgung der Festelektrolyt-Elektroden-Einheit mit jeweils einem Betriebsmittel, z. B. Wasserstoff und Sauerstoff, versehen.

Dabei bilden jeweils ein zwischen den benachbarten Verbundleiterplatten liegende Elektrolyt-Elektroden-Einheit mit den beidseitig an der Elektrolyt-Elektroden-Einheit unmittelbar anliegenden Kontaktschichten, und den an den Kontaktschichten anliegenden Seiten jeder der beiden Verbundleiterplatten zusammen eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle. Dieser und weitere Typen von Brennstoffzellen sind beispielsweise aus dem "Fuel Cell Handbook" von A. J. Appleby und F. R. Foulkes, 1989, Seiten 440 bis 454, bekannt.

Zwei wesentliche Anforderungen an das Zusammenfügen der Komponenten zur Hochtemperatur-Brennstoffzelle sind die ausreichende elektrische Isolierung der Verbundleiterplatten gegeneinander, und zugleich die Ausbildung einer guten elektrischen Kontaktierung zwischen jeweils einer Seite der Elektrolyt-Elektroden-Einheit und einer Verbundleiterplatte.

Als problematisch beim Zusammenfügen der Komponenten der Hochtemperatur-Brennstoffzelle erweist sich, daß diese unterschiedliche Toleranzen und unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizienten aufweisen. Die unterschiedlichen Toleranzen entstehen beispielsweise durch mechanische Spannungen oder durch Dickeschwankungen. Unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizienten

sind durch die für die Komponenten eingesetzten verschiedenen Werkstoffe bereits vorgegeben.

Eine unzureichende Kontaktierung begrenzt die Querleitfähigkeit der Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Dadurch werden die kontaktierten Flächen überlastet und altern bereits frühzeitig.

Ein weiteres Problem besteht darin, daß bei einer hohen Betriebstemperatur der Hochtemperatur-Brennstoffzelle von beispielsweise 950°C an den Oberflächen der Komponenten Reaktionen mit dem Oxidanten, beispielsweise Sauerstoff oder Luft aus der Umgebung, und dem Brenngas, beispielsweise Wasserstoff, Methan oder Erdgas, unvermeidbar sind.

Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellen werden Geflechte aus Nickel für die elektrische Kontaktierung zwischen der metallischen Verbundleiterplatte und der Anodenseite der Elektrolyt-Elektroden-Einheit verwendet. Beim Aufheizen auf die Löttemperatur zum Zusammenfügen von beispielsweise 1000°C setzt sich bereits bei einer niedrigeren Temperatur, z. B. bei 850°C, bei entsprechend niedriger Viskosität des Glaslotes die Hochtemperatur-Brennstoffzelle bis zur vollständigen Kontaktierung ab. Das Geflecht wird demzufolge zwischen den Stegen der Verbundleiterplatte und der Elektrolyt-Elektroden-Einheit eingeklemmt.

Bei der Betriebstemperatur der Hochtemperatur-Brennstoffzelle ist der thermische Ausdehnungskoeffizient des Nickels größer als derjenige der metallischen Verbundleiterplatte, welche beispielsweise aus $\text{CrFe}_5\text{Y}_2\text{O}_3$ 1 besteht, bzw. der Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Damit dehnt sich das Geflecht stärker aus als die Verbundleiterplatte bzw. die Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Dadurch wird eine Verbiegung des Geflechts aus Nickel verursacht, was zu einer partiellen Trennung der Kontakte zwischen dem Geflecht und der metallischen Verbundleiterplatte bzw. der Anodenseite der Elektrolyt-Elektroden-Einheit führt. Die Ausbildung eines Oxidfilms an der Oberfläche der Verbundleiterplatte führt ebenfalls zu einem erhöhten Serienwiderstand, was zugleich zu einer Reduzierung der elektrischen Stromdichte führt.

Außerdem ist aus den Schriften DE 42 37 602 A1 und DE 39 22 673 C2 jeweils eine Funktionsschicht bekannt, die zwischen Elektrode und Verbundleiterplatte (hier bipolare Platte) angeordnet ist und den elektrischen Kontakt zwischen den beiden verbessert. In der DE 43 40 153 C1 ist dazu ein elektrisch leitendes, elastisches und gasundurchlässiges Kontaktkissen mit einer verformbaren Oberflächenstruktur vorgesehen.

Der Erfindung liegt somit die Aufgabe zugrunde, eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle anzugeben, welche eine erhöhte elektrische Stromdichte im Vergleich zu den aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellen aufweist. Außerdem soll ein Verfahren zum Herstellen einer solchen Hochtemperatur-Brennstoffzelle angegeben werden.

Die erstgenannte Aufgabe wird gemäß der Erfindung gelöst durch eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle mit wenigstens einer metallischen Verbundleiterplatte, die auf einer Oberfläche parallel zueinander verlaufende Stege aufweist, auf denen ein Geflecht so angeordnet ist, daß wenigstens ein Flechtaden des Geflechts schräg zu den Kanten der Stege angeordnet ist.

Die zweitgenannte Aufgabe wird gemäß der Erfindung gelöst durch ein Verfahren zum Herstellen einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle mit wenigstens einer metallischen Verbundleiterplatte, die auf einer Oberfläche parallel zueinander verlaufende Stege aufweist, auf denen ein Geflecht so angeordnet ist, daß wenigstens ein Flechtaden des Geflechts schräg zu den Kanten der Stege angeordnet ist, wobei

das Geflecht durch Schweißen auf der metallischen Verbundleiterplatte befestigt wird.

Bei dieser Hochtemperatur-Brennstoffzelle wird die elektrische Stromdichte um ungefähr 30 bis 50% von 600 bis 800 mA/cm² auf 1000 bis 1300 mA/cm² erhöht. Da die Flechtfäden nicht mehr, wie aus dem Stand der Technik bekannt, senkrecht oder parallel zu den Stegen angeordnet sind, werden die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten des Geflechts, der metallischen Verbundleiterplatte und der Elektrolyt-Elektroden-Einheit weitgehend durch eine Querverbiegung der Flechtfäden kompensiert. Durch diese Verformung wird der Kontakt zwischen der Verbundleiterplatte und der Elektrolyt-Elektroden-Einheit nicht beeinträchtigt. Außerdem wird die Anzahl der Knoten des Geflechts für den elektrischen Kontakt aufgrund dieser Anordnung gegenüber den aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellen erhöht, was ebenfalls zu einer Erhöhung der elektrischen Stromdichte beiträgt.

Um die gleiche Ausgangsleistung wie für einen aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel zu erhalten, werden 30 bis 50% weniger Hochtemperatur-Brennstoffzellen benötigt.

Vorzugsweise ist der Winkel β zwischen den Flechtfäden und den Kanten der Stege zwischen 35° und 55° groß. Durch die Wahl dieses Winkelbereiches wird die Anzahl der Knoten maximiert und demzufolge eine hohe Stromdichte erzielt. Außerdem ist eine ausreichende Durchlässigkeit des Geflechts für das Betriebsgas gegeben.

Insbesondere ist der Winkel β ungefähr 45° groß.

In einer weiteren Ausgestaltung ist der Winkel α zwischen den Flechtfäden größer 90°. Durch die Verwendung eines Geflechts, bei dem die Flechtfäden nicht rechtwinklig zueinander angeordnet sind, wird die elektrische Stromdichte ebenfalls erhöht.

Insbesondere ist der Querschnitt der Flechtfäden kreisförmig. Dadurch wird eine kostengünstige Realisierung des Geflechts erreicht.

In einer weiteren Ausgestaltung ist der Querschnitt der Flechtfäden rechtwinklig. Durch das rechtwinklig gewählte Profil wird die Kontaktfläche zu der metallischen Verbundleiterplatte bzw. der Anodenseite der Elektrolyt-Elektroden-Einheit vergrößert.

Vorzugsweise wird das Geflecht durch Elektronenstrahlschweißen, Laserschweißen oder Diffusionsschweißen befestigt.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltung der Erfindung sind in den Unteransprüchen wiedergegeben.

Zur weiteren Erläuterung der Erfindung wird auf die Ausführungsbeispiele der Zeichnung verwiesen. Es zeigen:

Fig. 1 einen Ausschnitt aus einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle in perspektivischer Darstellung und

Fig. 2 einen Flechtfaden eines Geflechts in perspektivischer Darstellung.

Gemäß Fig. 1 umfaßt ein Hochtemperatur-Brennstoffzelle 2 übereinander angeordnet eine metallische Verbundleiterplatte 4, wenigstens eine nicht weiter dargestellte Schutzschicht, ein Geflecht 6 und eine nicht weiter dargestellte Elektrolyt-Elektroden-Einheit, wobei die Anodenseite der Elektrolyt-Elektroden-Einheit auf der dem Geflecht 6 zugewandten Seite angeordnet ist.

Auf einer Oberfläche 8 der metallischen Verbundleiterplatte 4, wobei diese aus einer Chrombasislegierung besteht, sind gasführende Kanäle 10 parallel zueinander angeordnet. Die gasführenden Kanäle 14 führen dabei ein Betriebsmittel, beispielsweise Wasserstoff (H₂), für die Versorgung der Anodenseite der Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Die gasführenden Kanäle 10 sind jeweils durch Stege 12 voneinander

getrennt.

Werden mehrere Hochtemperatur-Brennstoffzellen 2 zu einem Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel zusammengesetzt, und befindet sich dabei die Hochtemperatur-Brennstoffzelle 2 innerhalb des Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapels angeordnet, so ist die metallische Verbundleiterplatte 4 als bipolare Platte ausgeführt. Dabei ist die nicht näher dargestellte Unterseite der metallischen Verbundleiterplatte 4 in gleicher Weise wie die Oberfläche 8 strukturiert.

Über die Stege 12 wird eine elektrisch leitende Verbindung mit der Anode der Elektrolyt-Elektroden-Einheit erreicht.

Das Geflecht 6, welches auf der Oberfläche 9 der Stege 12 der metallischen Verbundleiterplatte 4 zum Herstellen des elektrischen Kontaktes zwischen der Verbundleiterplatte 4 und der Anode der Elektrolyt-Elektroden-Einheit angeordnet ist, setzt sich aus den Flechtfäden 14, 16 zusammen. Das Geflecht ist dabei zusammenhängend und überbrückt die zwischen den Stegen 12 angeordneten Kanäle 10.

Das Geflecht 6 wird dabei so auf der Verbundleiterplatte 6 angeordnet, daß die Flechtfäden 14, 16 schräg zu den Kanten 20 der Stege 12 verlaufen. Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Hochtemperatur-Brennstoffzellen verlaufen die Flechtfäden 14, 16 parallel oder senkrecht zu den Kanten der Stege. Demgegenüber wird bei der vorliegenden Anordnung des Geflechts 6 auf der Verbundleiterplatte 4 die Anzahl der Knoten 24 auf der Oberfläche 9 der Stege 12 erhöht. Dadurch entstehen mehr Kontaktpunkte zwischen der Verbundleiterplatte 4 und der Elektrolyt-Elektroden-Einheit, wodurch eine erhöhte elektrische Stromdichte erreicht wird.

Vorzugsweise wird der Winkel β 22 zwischen den Flechtfäden 16 und den Kanten 20 der Stege 12 zwischen 35° und 55° groß gewählt. Dadurch wird die Anzahl der Knoten 24 des Geflechts 6 auf den Stegen 12 weitgehend maximiert und zugleich die Größe der Kontaktfläche der Flechtfäden 14, 16 mit der Oberfläche 9 der Stege 12 optimiert. Vorzugsweise wird der Winkel β 22 ungefähr 45° groß gewählt. Bei nicht weiter dargestellten Geflechten, welche aus wenigstens zwei Flechtfäden gewebt sind, verlaufen nicht alle Flechtfäden schräg zu den Kanten 20 der Stege 12.

Der Winkel α 18, der von den Flechtfäden 14 und 16 eingeschlossen ist, wird dabei größer 90°, bevorzugt zwischen 120° und 150°, gewählt. Durch diese Maßnahme wird die elektrische Stromdichte ebenfalls erhöht.

In Fig. 2 ist ein einzelner Flechtfaden 14, 16 dargestellt. Dieser Flechtfaden 14, 16 weist dabei einen rechtwinkligen Querschnitt 30 auf. Durch den rechtwinkligen Querschnitt 30 wird die Kontaktfläche zwischen den Flechtfäden 14, 16 und der Oberfläche 9 der Stege 12 ebenfalls vergrößert. In nicht weiter dargestellten Ausführungsformen ist der Querschnitt 30 quadratisch oder kreisförmig ausgeführt. Durch diese Ausführungsformen werden die Kosten für das Geflecht 6 gegenüber den aus dem Stand der Technik bekannten Geflechten verringert. Außerdem kann die Dicke der Flechtfäden 14, 16 auch unterschiedlich ausgeführt sein.

Die Flechtfäden 14, 16 bestehen aus Nickel (Ni) oder aus einer hochwarmfesten Legierung, wobei diese Legierung einen thermischen Ausdehnungskoeffizienten aufweist, der annähernd denen der metallischen Verbundleiterplatte 4 und der Elektrolyt-Elektroden-Einheit ist. Durch diese Maßnahme weisen das Geflecht 6, die metallische Verbundleiterplatte 4 und die Elektrolyt-Elektroden-Einheit bei der Betriebstemperatur der Hochtemperatur-Brennstoffzelle 2 ein ähnliches Ausdehnverhalten auf.

Zum Befestigen des Geflechts 6 auf den Stegen 12 werden Schweißverfahren angewendet. Dabei bieten sich bevorzugt das Elektronenschweißen, das Laserschweißen und

das Diffusionsschweißen an.

Patentansprüche

1. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) bestehend aus
einer Elektroden-Elektrolyt-Einheit und wenigstens ei- 5
ner metallischen Verbundleiterplatte (4), die auf der der
Elektrolyt-Elektroden-Einheit zugewandten Oberflä-
che (8) parallel zueinander verlaufende Stege (12) auf-
weist, auf denen ein Geflecht (6) so angeordnet ist, daß 10
ein Flechtfaden (14, 16) des Geflechts (6) schräg zu
den Kanten (20) der Stege (12) angeordnet ist.
2. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach Anspruch
1, bei der der Winkel β (22) zwischen den Flechtfäden
(16) und den Kanten (20) der Stege (12) zwischen 35° 15
und 55° groß ist.
3. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach Anspruch
1, bei der der Winkel β (22) bevorzugt ungefähr 45°
groß ist.
4. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach einem der 20
vorhergehenden Ansprüche, bei der der Winkel α (18)
zwischen den Flechtfäden (14) und den Flechtfäden
(16) größer 90° ist.
5. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach Anspruch
4, bei der der Winkel α (18) bevorzugt zwischen 120° 25
und 150° groß ist.
6. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach einem der
vorhergehenden Ansprüche, wobei der Querschnitt
(30) der Flechtfäden (14, 16) kreisförmig ist.
7. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach einem der 30
Ansprüche 1 bis 5, wobei der Querschnitt (30) der
Flechtfäden (14, 16) rechtwinklig ist.
8. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach Anspruch
7, wobei der Querschnitt (30) der Flechtfäden (14, 16)
quadratisch ist. 35
9. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach einem der
vorhergehenden Ansprüche, bei der die Dicke der
Flechtfäden (14) von der Dicke der Flechtfäden (16)
verschieden ist.
10. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach einem 40
der vorhergehenden Ansprüche, bei der die Flechtfä-
den (14, 16) aus Nickel (Ni) bestehen.
11. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) nach einem
der Ansprüche 1 bis 9, bei der die Flechtfäden (14, 16)
aus einer hochwarmfesten Legierung bestehen, welche 45
einen thermischen Ausdehnungskoeffizienten angenä-
hert dem der metallischen Verbundleiterplatte (4) auf-
weist.
12. Verfahren zum Herstellen einer Hochtemperatur-
Brennstoffzelle (2), die aus einer Elektrolyt-Elektro- 50
den-Einheit und wenigstens einer metallischen Ver-
bundleiterplatte (4) besteht, wobei die Verbundleiter-
platte (4) auf der der Elektroden-Elektrolyt-Einheit zu-
gewandten Oberfläche (8) parallel zueinander verlau-
fende Stege (12) aufweist, auf denen ein Geflecht (6) 55
so angeordnet ist, daß wenigstens ein Flechtfaden (14,
16) des Geflechts (6) schräg zu den Kanten (20) der Ste-
ge (12) angeordnet ist, wobei das Geflecht (6) durch
Schweißen auf der metallischen Verbundleiterplatte (4)
befestigt wird. 60
13. Verfahren nach Anspruch 12, wobei das Geflecht
(6) durch Elektronenstrahlschweißen befestigt wird.
14. Verfahren nach Anspruch 12, wobei das Geflecht
(6) durch Laserschweißen befestigt wird.
15. Verfahren nach Anspruch 12, wobei das Geflecht 65

(6) durch Diffusionsschweißen befestigt wird.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

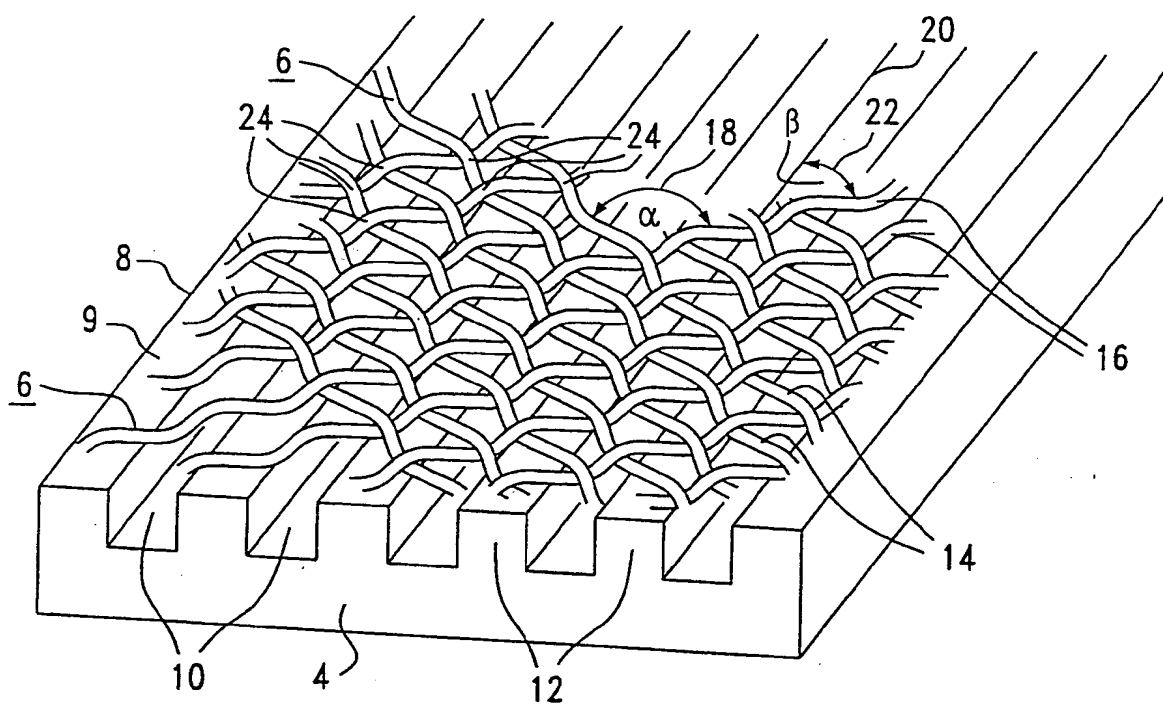


FIG 1

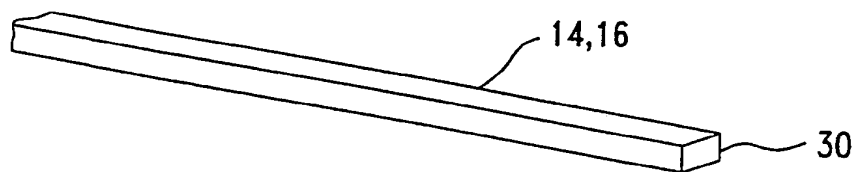


FIG 2